

強誘電体薄膜の動的ドメインスイッチング特性を利用した 巨大電気光学効果の発現

Large Electro-optic Effect in Ferroelectric Thin Films using the Dynamic Domain Switching

M20助自112

代表研究者 山 田 智 明 名古屋大学 工学研究科 エネルギー理工学専攻 教授
Tomoaki Yamada Professor, Graduate School of Engineering, Department of Energy Engineering,
Nagoya University

It is widely known that substrate clamping in ferroelectric thin films affects their properties. Especially, the ferroelastic domain structure can be varied by the substrate, and thus it influences their domain switching behavior. In this study, we focused on such an impact in the ferroelectric thin films, and their contribution to the electro-optic (EO) property. We fabricated epitaxial $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.7}\text{Ti}_{0.3})\text{O}_3$ (PZT) (001) and (111) thin films on $\text{SrRuO}_3/\text{SrTiO}_3$ substrates by pulsed laser deposition. It was found that the PZT (111) film has a polydomain structure, where the domains with two different out-of-plane polarization components coexist, while the PZT (001) film does not. Therefore, the PZT (111) film showed the reversible domain switching by AC electric field. It was revealed that the EO coefficient r_c of the PZT (111) film was maximized at 50 kV, where the domain switching was also maximized. Similar enhancement of EO coefficient was also observed for the PZT (111) film on $\text{SrRuO}_3/\text{KTaO}_3$ substrate.

研究目的

無機の強誘電体薄膜の電気光学 (EO) 効果が、近年再び注目を集めつつある。その理由として、IBMチューリッヒ研究所を中心とするグループによってSi基板上の BaTiO_3 (BTO) 薄膜で高いEO特性が報告されたこと、プラズモニックEOデバイスにより群速度の制御や効果的な光の閉じ込めが可能になり、EOデバイスの大幅な小型化が期待されていることが挙げられる。しかし、このようなデバイスで用いられる強誘電体薄膜の厚みは数100 nm以下であり、次世代のEOデバイスを実現するためには、基板に拘束された薄膜のEO特性の理解がより重要になる。基板による強誘電体薄膜の拘束は、膜の歪みだけでなく、そのドメイン構造にも大

きな影響を与えることが知られている。また、薄膜のドメイン構造の違いによって、電場に対する強弾性ドメインスイッチングの振る舞いが異なることも知られつつある。したがって、もし基板の選択によって強誘電体薄膜の強弾性ドメインスイッチングを増加させることができれば、電場に対して大きな屈折率の変化が得られることから、見かけのEO特性は大きく向上する可能性がある。また、強誘電体薄膜における強弾性ドメインスイッチングは、100 ns以下の時間で起こることも報告されており、高速EO素子への応用の可能性も期待できる。そこで、本研究では、強誘電体薄膜の動的な強弾性ドメインスイッチングを利用してEO効果の向上が実際に可能であるかを明らかにすることを目的とした。

概 要

無機の強誘電体薄膜の電気光学 (EO) 効果が、近年再び注目を集めつつある。その理由として、IBMチューリッヒ研究所を中心とするグループによってSi基板上のBaTiO₃ (BTO) 薄膜において高いEO特性が報告されたこと、プラズモニックEOデバイスにより群速度の制御や効果的な光の閉じ込めが可能になり、EOデバイス的大幅な小型化が期待されていること、が挙げられる。しかし、このようなデバイスで用いられる強誘電体薄膜の厚みは数100 nm以下であり、次世代のEOデバイスを実現するためには、基板に拘束された薄膜のEO特性の理解がより重要になる。基板による強誘電体薄膜の拘束は、膜の歪みだけでなく、そのドメイン構造にも大きな影響を与えることが知られている。また、薄膜のドメイン構造の違いによって、電場に対する強弾性ドメインスイッチングの振る舞いが異なることも知られつつある。したがって、もし基板の選択によって強誘電体薄膜の強弾性ドメインスイッチングを増加させることができれば、電場に対して大きな屈折率の変化が得られることから、見かけのEO特性は大きく向上する可能性がある。また、強誘電体薄膜における強弾性ドメインスイッチングは、100 ns以下の時間で起こることも報告されており、高速EO素子への応用の可能性も期待できる。そこで、本研究では、強誘電体薄膜の動的な強弾性ドメインスイッチングを利用してEO効果の向上が実際に可能であることを明らかにすることを目的とした。

パルスレーザー堆積 (PLD) 法を用いて、菱面体晶Pb (Zr_xTi_{1-x}) O₃ (PZT) ($x=0.7$) 薄膜をSrRuO₃ (SRO) /SrTiO₃ (STO) (001) 及びSRO/STO (111) 単結晶基板上に作製した。PZT薄膜は基板と同じ結晶方位でエピタキシャル成長

し、PZT (001) 膜は全てのドメインが等価な面外分極量を有していること、PZT (111) 膜は面外方向に異なる分極量を有するドメインが混在し、電場の印加によって、分極の割合 (分率) が動的に変化する可能性が示唆された。これらの薄膜のEO特性を評価した結果、PZT (001) 膜では変調強度がOffset電界に対して一定であるのに対し、PZT (111) 膜ではOffset電界の増加に伴い抗電界近傍で増加した後、急減、急増し、その後、減少する傾向が観測された。PFM位相像の測定から、(1) 抗電界では、互いに位相が180°異なるドメインが共存するために、両者のEO応答が相殺して変調強度が減少すること、(2) 抗電界の前後では、AC電場で(111) ドメインと(-111) ドメインの間で動的なスイッチングが起きて変調強度が増大することが示唆された。動的なスイッチングの詳細を明らかにするために、AC電界をユニポーラで変調させたときの分極量の変化を測定した結果、PZT (001) 膜では、AC電界に比例して分極値が変化したのに対し、PZT (111) 膜ではAC電界とともに急増し、50 kV/cm付近で最大値を示した後、減少することが明らかとなった。さらに、AC電界をユニポーラで印加した際のEO特性を評価した結果、PZT (001) 膜ではAC電界に比例して変調強度が増加したのに対し、PZT (111) 膜ではAC電場とともに増大し、減少した後再び増加した。電場に対する変調強度の大きさがEO係数を表していることから、EO係数はPZT (001) 膜ではAC電界によらず一定であったのに対し、PZT (111) 膜ではAC電場とともに急増し、減少したのち一定になることが明らかとなった。その結果、PZT (111) 膜のEO係数の最大値は、PZTの内因的EO効果 (26.8 pm/V) の約3倍に達することが明らかとなった。さらに、同様の現象は異なる基板上でも観測され、KTaO₃ (111) 基板上のPZT (111) 膜は(-111)

ドメインの割合が多く、電場印加によってより多くのドメインスイッチングが起き、広い電場領域でEO係数が増大することが明らかになった。また、ドメインスイッチングによるEO効果の増大は、実験を行った駆動周波数の範囲（最大1 kHz）で有効であり、今後、さらなる高速動作に向けた検証を行う予定である。

－以下割愛－